

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (uspto)



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenl gungsschrift**
⑩ **DE 197 48 481 A 1**

⑤① Int. Cl.⁶:
B 01 F 5/06
B 01 F 5/02

②① Aktenzeichen: 197 48 481.6
②② Anmeldetag: 3. 11. 97
②③ Offenlegungstag: 12. 5. 99

DE 197 48 481 A 1

⑦① Anmelder:

Institut für Mikrotechnik Mainz GmbH, 55129 Mainz,
DE

⑦② Erfinder:

Ehrfeld, Wolfgang, Prof. Dr., 55124 Mainz, DE;
Gebauer, Klaus, 65185 Wiesbaden, DE; Golbig,
Klaus, Dr., 55270 Zornheim, DE; Richter, Thomas,
Dr., 55118 Mainz, DE; Scholl, Thomas, 55130 Mainz,
DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:

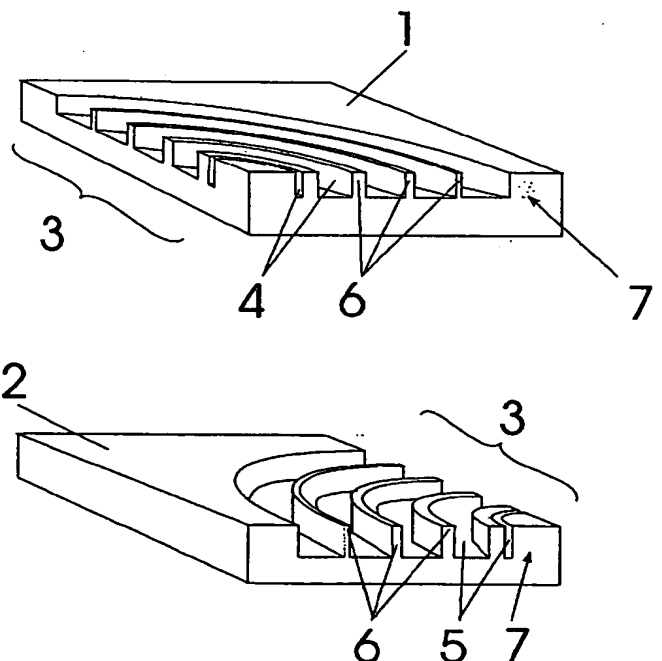
DE 1 95 40 292 C2

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Statistischer Mikrovermischer, und Mikroreaktor sowie dessen Verwendung

⑤⑦ Die Erfindung betrifft einen statischen Mikrovermischer mit einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr von zu mischenden oder zu dispergierenden Fluiden, wobei das Führungsbauteil aus mit Nuten (4, 5) versehenen Folien (1, 2) mindestens zweier Arten A und B besteht, die beim Über-einanderschichten je eine Schar von Kanälen für die Führung der zu mischenden Fluide A' und B' bilden. Kennzeichen der Erfindung ist, daß die Nuten mindestens einer Elementart A bzw. B unterschiedliche Länge mit einem bogenförmig gekrümmten Abschnitt aufweisen, und daß die Wanddicken der Stege (6) zwischen den längeren Nuten einen kleineren Abstand aufweisen als zwischen den kürzeren Nuten. Hierdurch wird bei beliebigen Anordnungsmöglichkeiten der Zufuhrkammern eine über die gesamte Stirnfläche (7) gleich hohe Mischungseffektivität erreicht. Weiterhin beschreibt die Erfindung einen Mikroreaktor zur Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen, der ein erfindungsgemäßes Führungsbauteil für die getrennt Zufuhr mindestens zweier gasförmiger Edukte A' und B', eine Mischkammer und einen Katalysator umfaßt, wobei der Katalysator aus übereinandergeschichteten, mit Nuten versehenen Folien besteht, deren Oberfläche ein katalytisch aktives Material aufweist. Der Mikroreaktor eignet sich besonders für die Herstellung von Ethenoxid durch katalytische Oxidation von Ethen mit Luft oder molekularem Sauerstoff.



DE 197 48 481 A 1

Die Erfindung betrifft einen statischen Mikrovermischer mit einer Mischkammer und einem vorgeschalteten Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr von zu mischenden oder zu dispergierenden Fluiden zu der Mischkammer gemäß dem Oberbegriff des Hauptanspruchs. Weiterhin betrifft die Erfindung einen Mikroreaktor zur Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen, der ein Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr mindestens zweier gasförmiger Edukte A' und B', eine Mischkammer und einen Katalysator umfaßt, wobei das Führungsbauteil und die Mischkammer von einem erfindungsgemäßen statischen Mikrovermischer gebildet werden.

Aus der WO 95/30476 ist ein statischer Mikrovermischer bekannt, der eine Mischkammer und ein Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr der zu mischenden Stoffe vorsieht. Das Führungsbauteil besteht aus dünnen Folien mit jeweils einer Schar paralleler, geradliniger Nuten, die als plattenartige Elemente übereinandergeschichtet sind. Die Nuten der übereinanderliegenden Folien weisen eine zur Mikrovermischer-Längsachse abwechselnde Schräge auf, so daß die an die Mischkammer angrenzenden Öffnungen der Kanäle fluchtend übereinander liegen und an der Fluideintrittsseite hin zu getrennten Eintrittskammern divergieren. Die Kanäle des Führungsbauteils weisen jeweils die gleiche Länge und damit den gleichen Strömungswiderstand auf. Da die Fluide zu unterschiedlichen Seiten gerichtet in die Mischkammer einströmen, ist die Mischungseffektivität an den Randzonen der Mischkammer geringer als im Zentrum.

Zur Erhöhung der örtlichen Effektivität der Vermischung wird in der DE 195 40 292 C1 vorgeschlagen, daß die jeweiligen Scharen von Nuten in den übereinandergeschichteten Folien jeweils bogenförmig gekrümmt und abwechselnd von der Mischkammer zu je einer der beiden Zufuhrkammern verlaufen, so daß alle Nuten parallel zueinander ausgerichtet in die Mischkammer münden. Zur Erzielung gleicher Strömungswiderstände wird angegeben, die Seiten des Führungsbauteils, die an die Zufuhrkammern grenzen, gegenüber der an die Mischkammer grenzende Seite so zu neigen, daß die Kanäle eine annähernd gleiche Länge aufweisen. Zur Vermeidung gekrümmter Eintrittsflächen wird angegeben, die Flächen entsprechend einer nach einer angegebenen Formel zu bestimmenden Näherungsgeraden auszurichten. Dies erlaubt jedoch nur kleine Bogenwinkel der Nuten, so daß eine Anordnung der Zufuhrkammern an zwei sich gegenüberliegenden Seiten des Führungsbauteils oder eine getrennte Zufuhr von mehr als zwei Fluiden kaum realisierbar ist.

Aus der DE 39 26 466 A1 ist ein Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen mit starker Wärmetönung bekannt, in dem Stoff-, Reaktions- und Wärmeleitung in übereinandergeschichteten, plattenartigen Elementen stattfindet, die durch ein System aus durch Zerspanung hergestellten Rillen durchzogen und verbunden sind. Von Vorteil ist die extreme Wärmeabfuhrleistung, so daß die reagierenden Substanzen (Edukte) in hohen Konzentrationen gemischt und zur Reaktion gebracht werden können. Der Mikroreaktor selbst kann aus einem Katalysatormaterial gefertigt sein. Ein entscheidender Nachteil der Erfindung sind die unterschiedlichen Längen der Rillen zwischen den jeweiligen Eintrittsöffnungen und der Mischzone. Hierdurch weist der Mikroreaktor von der Länge der Rillen abhängige Strömungswiderstände auf, so daß unterschiedliche Volumenströme zur Mischung kommen, was eine über den Bereich der Mischzone inhomogene Mischung zur Folge hat. Unerwünschte Folge- und Nebenreaktionen können somit stattfinden. Ein weiterer entscheidender Nachteil der Erfindung,

insbesondere wenn der Mikroreaktor aus einem Katalysatormaterial besteht, ist, daß die Reaktion schon mit der Vermischung der Stoffströme einsetzt. Dadurch ist es nicht möglich, Edukte in gezielten Mischungsverhältnissen zur Reaktion zu bringen und Folge- und Nebenreaktionen zu vermeiden.

Weiterhin wird in der WO 95/30476 ein Verfahren zur Durchführung chemischer Reaktionen vorgestellt. Dadurch, daß die Edukte in Fluidfäden aufgeteilt werden, gelangen die Edukte eng benachbart als Freistrahlen in einen Raum, der als Misch- und Reaktionsraum dient, wo sie durch Diffusion und Turbulenz vermischen und zur Reaktion kommen. Der Vorteil hierbei ist, daß durch die Aufteilung in Fluidfäden die Edukte schnell homogen vermischt werden, wodurch eine folge- und nebenproduktfreie Reaktion stattfindet. Eine Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen ist nach diesem Verfahren nicht möglich.

Ausgehend vom oben genannten Stand der Technik hat die Erfindung zur Aufgabe, bei einem statischen Mikrovermischer und einem Mikroreaktor der zuvor genannten Bauart das Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr der zu mischenden Fluide so zu gestalten, daß beliebige Bogenwinkel der Nuten und damit beliebige Anordnungen der Zufuhrkammern und eine getrennte Zufuhr von mehr als zwei Fluiden realisierbar sind, bei einer über die gesamte Fläche des an die Mischkammer grenzenden Führungsbauteils gleich hohen Mischungseffektivität.

Die Aufgabe wird mit den Merkmalen des Hauptanspruchs und des Anspruchs 18 gelöst, wobei die abhängigen Ansprüche vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung beschreiben.

Trotz der Verwendung gekrümmter Nuten unterschiedlicher Länge ist es mit dem erfindungsgemäßen Führungsbauteil möglich, die an die Mischkammer grenzende Stirnfläche des Elementes A bzw. B so in gleich große Teilflächen zu unterteilen, daß aus jeder Teilfläche pro Zeiteinheit im wesentlichen das gleiche Fluidvolumen in die Mischkammer austritt, womit eine über die gesamte Stirnfläche gleich hohe Mischungseffektivität erreicht wird. Gemäß einer Ausführungsform wird dies durch Nuten gleichen Querschnitts erreicht, wobei die längeren Nuten kürzere Abstände zueinander aufweisen als die kürzeren Nuten.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform sind die Querschnitte der Nuten des Führungsbauteils so bemessen, daß aus jedem von den Nuten einer Elementart gebildeten Kanal pro Zeiteinheit das gleiche Fluidvolumen aus dem Führungsbauteil in die Mischkammer austritt. Dies bedeutet, daß die längeren Nuten einen größeren Querschnitt aufweisen als die kürzeren Nuten. Hierbei sind die sich von den kürzeren zu den längeren Nuten hin verkleinernden Wanddicken der Zwischenstege so zu bemessen, daß die Mitten der Nuten einen gleichen Abstand aufweisen.

Vorteilhaft ist die hohe Freiheit der Anordnung der Zufuhrkammern. So können bei Bogenwinkeln der Nuten von 90° die Zufuhrkammern auf zwei sich gegenüberliegenden Seiten des Führungsbauteils angeordnet werden. Damit wird es auch möglich, eine weitere Zufuhrkammer für die getrennte Zufuhr eines dritten Fluids vorzusehen. Der erfindungsgemäße Mikrovermischer läßt sich vorteilhaft in der Mikroreaktionstechnologie zur Zuführung und Vermischung hochreaktiver Fluide einsetzen. Darüberhinaus kann dieser Mikrovermischer auch als zünddurchschlagsicheres Bauteil dienen.

Mit dem erfindungsgemäßen Mikroreaktor lassen sich mindestens zwei Edukte durch Multilamination zeitlich und örtlich effektiv mischen und die so in der Mischkammer erhaltene, homogene Mischung an dem Katalysator zur Reaktion bringen. Durch die laminare Strömung in den Kanälen

der plattenartigen Elemente des Katalysators liegt ein enges Verweilzeitspektrum der Edukte bzw. Produkte vor. Durch die Bemessung des Querschnitts und der Länge der Kanäle läßt sich die Verweilzeit genau einstellen, so daß die Ausbeute und die Selektivität einer heterogen katalysierten Gasphasenreaktion maximiert, und ein Ablauf von unerwünschten Neben- und Folgereaktionen vermieden werden kann. Durch die kleinen Abmessungen, die Durchschlagsicherheit und die gute Wärmeleitung des aus plattenartigen Elementen aufgebauten Katalysators eignet sich der erfindungsgemäße Mikroreaktor insbesondere für stark exotherme Reaktionen, die auch bei stöchiometrischen Mischungsverhältnissen ohne die Verwendung von Inertgasen durchgeführt werden können. Die plattenartigen Elemente des Mikrovermischers und des Mikroreaktors lassen sich austauschen, so daß ein variabler Laboreinsatz möglich wird. Eine parallele Anordnung vieler Mikrovermischer bzw. Mikroreaktoren erlaubt einen Durchsatz größerer Stoffmengen und damit einen industriellen Einsatz.

Der Mikroreaktor eignet sich besonders für heterogen katalysierte Gasphasenreaktionen bei hohen Temperaturen von 300 bis 1100°C. Insbesondere lassen sich ungesättigte Verbindungen, beispielsweise Ethen oder Propen, mit Luft oder molekularem Sauerstoff zu Oxiranen umsetzen. Vorteilhaft können hierbei stöchiometrische Mischungsverhältnisse gewählt werden, die sich bei herkömmlichen Anlagen aus Sicherheitsgründen verbieten.

Ausführungsbeispiele des erfindungsgemäßen Mikrovermischers und Mikroreaktors werden anhand der folgenden schematischen Zeichnungen näher erläutert. Es zeigen:

Fig. 1 zwei plattenartige Elemente der Art A und B mit Nuten gleichen Querschnitts in perspektivischer Darstellung,

Fig. 2 zwei plattenartige Elemente der Art A und B mit Nuten unterschiedlichen Querschnitts in perspektivischer Darstellung,

Fig. 3 einen Mikrovermischer mit zwei Zufuhrkammern für die Fluide A' und B' in Draufsicht,

Fig. 4 drei plattenartige Elemente der Art A, B und C in perspektivischer Darstellung,

Fig. 5 einen Mikrovermischer mit drei Zufuhrkammern für die Fluide A', B' und C' in Draufsicht,

Fig. 6 ein Führungsbauteil für drei Fluide A', B' und C' in Draufsicht mit angedeutetem Verlauf der Kanäle,

Fig. 7 einen Mikrovermischer für zwei Fluide A' und B' mit einem in das Führungsbauteil integrierten Wärmetauscher in Draufsicht,

Fig. 8 drei plattenartige Elemente mit geradlinig verlaufenden Nuten gleichen Abstands in perspektivischer Darstellung,

Fig. 9 einen Mikroreaktor in Draufsicht.

Gemäß Fig. 1 weisen die plattenartigen Elemente 1, 2 eine Schar 3 von Nuten 4, 5 auf. Die in Fig. 1 nach vorne zeigende Stirnfläche 7 grenzt in dem Mikrovermischer an die Mischkammer an, während die Nuten 4 des plattenartigen Elementes 1 der Art A und die Nuten 5 des plattenartigen Elementes 2 der Art B gekrümmt in Richtung entgegengesetzt liegender Zufuhrkammern verlaufen. Die plattenartigen Elemente 1, 2 bestehen aus Folien mit Dicken bis zu einigen Millimetern, vorzugsweise < 1 mm, besonders bevorzugt < 500 µm. Dadurch, daß die plattenartigen Elemente 1, 2, die einen gleichen Grundriß haben, abwechselnd übereinander gestapelt und oben mit einer Deckplatte versehen werden, sind die Nuten jedes Elementes nach oben abgeschlossen, wodurch in Viertelkreisbögen verlaufende Kanäle gebildet werden. In Fig. 1 weisen die Nuten 4, 5 jedes Elementes 1, 2 einen gleichen Querschnitt auf, während die Wanddicken der Zwischenstege 6 von den kürzeren Nuten mit ei-

nem kleinen Krümmungsradius hin zu den längeren Nuten mit einem größeren Krümmungsradius abnehmen. Dies ermöglicht, daß die Stirnfläche 7 jedes Elementes 1, 2 so in gleich große Teilflächen unterteilt werden kann, daß trotz des größeren Strömungswiderstandes der längeren Kanäle pro Zeiteinheit aus jeder gedachten Teilfläche das gleiche Fluidvolumen in die Mischkammer austreten kann.

In Fig. 2 sind zwei plattenartige Elemente 1, 2 der Art A und B dargestellt, wobei jedes Element eine Schar 3 von Nuten 4, 5 aufweist. Die längeren Nuten, d. h. die Nuten mit einem größeren Krümmungsradius, weisen einen größeren Querschnitt auf als die kürzeren Nuten, d. h. als die Nuten mit einem kleineren Krümmungsradius. Die Dicken der Zwischenstege 6 sind so bemessen, daß die Mitten der Querschnittsflächen der Nuten jedes Elementes einen gleichen Abstand aufweisen. Damit verringern sich die Dicken der Zwischenstege 6 von den kürzeren Nuten hin zu den längeren Nuten und beim Übereinanderlagern der plattenartigen Elemente liegen die Nuten der Elementart A und die Mitten der Nuten der Elementart B genau übereinander. Die Querschnitte der Nuten sind so bemessen, daß trotz der unterschiedlichen Längen der Kanäle pro Zeiteinheit aus jedem Kanal eines Elementes das gleiche Fluidvolumen in die Mischkammer austritt. Damit kann über die gesamte Stirnfläche 7 für jedes Fluid A' und B' ein gleichmäßig hoher Fluidstrom und damit eine gleichmäßig hohe Mischungseffektivität erzielt werden.

Ein statischer Mikrovermischer 11 mit einem Führungsbauteil 13, das aus den in Fig. 2 dargestellten, übereinandergeschichteten, plattenartigen Elementen 1, 2 besteht, ist in Fig. 3 schematisch gezeigt. Der Mikrovermischer 11 umfaßt Ausnehmungen für die Zufuhrkammern 14, 15, für das Führungsbauteil 13 und für die Mischkammer 12. Die von der Zufuhrkammer 14 des Fluids A' und von der Zufuhrkammer 15 des Fluids B' verlaufenden Kanäle 4, 5 sind in ihrer Lage angedeutet. Beide Zufuhrkammern sind in ihrer Tiefe derart ausgelegt, daß aufgrund des vom Führungsbauteil 13 erzeugten Druckabfalls der Strahlendruck der Zuleitung der Fluide A' bzw. B' über die ganze Eintrittsfläche 16 bzw. 17 homogenisiert wird. Die plattenartigen Elemente sind entsprechend der beiden Arten A und B alternierend zu einem Führungsbauteil übereinandergeschichtet und druckdicht in die entsprechende Ausnehmung des Mikrovermischerbauteils eingepaßt. Nach oben sind die plattenartigen Elemente mit einer hier nicht dargestellten Deckplatte abgedeckt, die die obersten Nuten abschließt und den Folienstapel druckdicht zusammenhält. Mit diesem Mikrovermischer ist es möglich, zwei Fluide A' und B' von getrennten Seiten 16, 17 an das Führungsbauteil heranzuführen und durch übereinanderliegende Kanäle als Fluidfäden in die Mischkammer zu leiten. Dadurch, daß in die Mischkammer alternierend Lagen von Fluidfäden der Art A und der Art B einströmen, und pro Zeiteinheit aus jedem Kanal einer Art das gleiche Fluidvolumen austritt, ist eine gute Vermischung bzw. Dispergierung der Fluide gewährleistet.

Drei unterschiedliche plattenartige Elemente 20, 21, 22 der Arten A, B, C sind in Fig. 4 dargestellt. Das oberste Element 20 und das unterste Element 21 entsprechen den in Fig. 2 dargestellten Elementen 1 bzw. 2. Das mittlere Element 22 der Art C weist eine Schar 3 geradliniger Nuten 23 mit gleichem Querschnitt auf, die durch Zwischenstege 6 gleicher Dicke gleich beabstandet sind.

Ein Mikrovermischer, in dessen Führungsbauteil die in Fig. 4 dargestellten plattenartigen Elemente 20, 21, 22 integriert sind, ist in Fig. 5 schematisch gezeigt. Der Verlauf der Elementarten A, B und C zugehörigen Nuten 23, 24 und 25 ist in Fig. 5 angedeutet. Die aus Folien bestehenden plattenartigen Elemente können in der sich wiederholenden Rei-

henfolge A, B, C angeordnet sein. Eine Reihenfolge A, C, B, C kann vorteilhaft sein, wenn durch die Kanäle der Elementart C ein Fluid C' geleitet werden soll, das im Überschuß, beispielsweise als inertes Gas oder Flüssigkeit, die zu mischenden Fluide A' und B' verdünnen soll. An das Führungsbauteil 13 grenzen die Zufuhrkammern 30, 31, 32 für die Fluide A, B und C. Die Eintrittsfläche 28 des Fluids C' liegt parallel zu der Austrittsfläche 18. Die beiden Eintrittsflächen 26, 27 der Fluide A' und B' liegen sich parallel gegenüber und bilden mit der Eintrittsfläche 28 des Fluids C' einen Winkel von 90°. In dieser Darstellung haben die plattenartigen Elemente 20, 21, 22 einen quadratischen Grundriß. Die zu mischenden Fluide A', B' und C' gelangen als eine Vielzahl von Fluidfäden aus den Kanälen der Stirnfläche 18 in die Mischkammer 12.

Ein weiteres Führungsbauteil für die getrennte Zufuhr von drei Fluiden A', B' und C' ist in Fig. 6 schematisch dargestellt. Der Verlauf, der sich aus den Nuten 23, 24, 25 der hier nicht einzeln dargestellten plattenartigen Elemente 20, 21, 22 ergebenden Kanäle, ist angedeutet. Der Grundriß der übereinandergeschichteten plattenartigen Elemente ist derart, daß die den Fluidarten A' und B' zugeordneten Eintrittsflächen 26 und 27 in Ebenen liegen, die zueinander einen Winkel $\alpha = 90^\circ$ bilden, und diese mit der Eintrittsfläche 28 des Fluids C' einen Winkel von $\beta = 135^\circ$ bilden. Die Eintrittsfläche 28 liegt parallel zu der Austrittsfläche 18, in der die Kanäle parallel ausgerichtet einmünden. Aufgrund der unterschiedlichen Abstände der Kanäle bzw. der unterschiedlichen Bemessung der Querschnitte der Kanäle und der Zwischenstege lassen sich unterschiedliche Verläufe der Kanäle in dem Führungsbauteil realisieren, ohne daß es an der Austrittsfläche 18 zur Mischkammer Gebiete unterschiedlich hoher Mischungseffektivität gibt.

Ein Mikrovermischer, der ein Führungsbauteil mit integriertem Wärmetauscher aufweist, ist in Fig. 7 dargestellt. Das Führungsbauteil 13 weist neben den plattenartigen Elementen 1, 2 der Art A und B, wie sie in Fig. 2 dargestellt sind, zusätzlich plattenartige Elemente 40 mit zu den Nuten 4, 5 der Arten A und B quer verlaufenden Nuten 43 auf. Der Verlauf der Nuten 4, 5, 43 ist in Fig. 7 angedeutet. Diese plattenartigen Elemente 40 sind zwischen den die Fluide A bzw. B führenden Elementen 1, 2 angeordnet und können Kühl- bzw. Heizmittel führen. Der Mikrovermischer weist neben den Zufuhrkammern 14, 15 für die Fluide A und B eine zusätzliche Kammer 41 für die Zufuhr eines Kühl- bzw. Heizmittels und eine entsprechende Austrittskammer 42 auf. Mit diesem Mikrovermischer ist es möglich, die Fluide A und B vor ihrer Vereinigung in der Mischkammer 12 auf eine durch das Kühl- bzw. Heizmittel einstellbare Temperatur zu bringen. Damit eignet sich dieses Bauteil ideal in der Mikroreaktionstechnologie zur gezielten Einstellung der Temperatur von miteinander reagierenden Edukten A und B.

Fig. 8 zeigt drei plattenartige Elemente 52, von denen der Katalysator des erfindungsgemäßen Mikroreaktors mehrere enthalten kann. Die plattenartigen Elemente 52 bestehen aus dünnen Folien, die geradlinig verlaufende Nuten 53 gleichen Abstandes aufweisen. Durch das Übereinanderschichten dieser Folien bilden sich von der Mischkammer zur Auslaßkammer verlaufende Kanäle aus. Die Kanäle weisen ein hohes Oberflächen-Volumen-Verhältnis auf. Die Folien selbst können aus einem katalytisch aktiven Material gefertigt sein oder die Kanäle weisen auf ihrer Oberfläche ein katalytisch aktives Material auf, das beispielsweise durch CVD- oder PVD-Verfahren aufgebracht werden kann. Die Edukte bzw. Produkte weisen innerhalb des Katalysators bedingt durch die laminaren Strömungsverhältnisse ein enges Verweilzeitspektrum auf. Durch Variation der Querschnitte und Längen der Kanäle läßt sich die Verweilzeit der Edukte

bzw. Produkte bezogen auf eine hohe Ausbeute und Selektivität optimieren. Die Katalysatorfolien stehen im thermischen Kontakt zu dem Mikroreaktorbauteil, in das die Folien eingepaßt sind. Hierdurch ist bei exothermen Reaktionen ein guter Wärmeabtransport durch Wärmeleitung gewährleistet. Es kann vorteilhaft sein, zusätzlich in den Katalysator einen Wärmetauscher zur Abfuhr der Reaktionswärme zu integrieren. Bei endothermen Reaktionen kann über einen Wärmetauscher die notwendige Reaktionswärme hinzugeführt werden. Darüberhinaus kann eine Vorrichtung zum elektrischen Beheizen des Katalysators oder/und des Führungsbauteils vorgesehen werden, beispielsweise um die für eine Reaktion notwendige Aktivierungsenergie bereitzustellen.

Ein Mikroreaktor 50 ist schematisch in Fig. 9 dargestellt. In diesem Beispiel entsprechen das Führungsbauteil 13 mit den plattenartigen Elementen 1, 2 und die Mischkammer 12 der in Fig. 3 gezeigten Anordnung eines Mikrovermischers. Der erfindungsgemäße Mikrovermischer läßt sich auch mit anderen Ausführungen des erfindungsgemäßen Mikrovermischers realisieren. An die Mischkammer schließt sich der Katalysator 51 an, der aus den in Fig. 8 gezeigten plattenartigen Elementen 52 besteht. Die durch die Nuten 53 der übereinandergeschichteten plattenartigen Elemente 52 gebildeten Kanäle, deren Verlauf hier angedeutet ist, verbinden die Mischkammer 12 mit der Auslaßkammer 54. Das Mikroreaktorbauteil 50 weist Ausnehmungen für die Zufuhrkammern 14, 15, das Führungsbauteil 13, die Mischkammer 12, den Katalysator 51 und die Auslaßkammer 54 auf. Die Ausnehmungen sind nach unten hin verschlossen und werden von oben mit einer Abdeckplatte verschlossen, die die plattenartigen Elemente 1, 2 des Führungsbauteils und 52 des Katalysators druckdicht zusammenhalten. Die Mischkammer 12 verbindet das Führungsbauteil 13 mit dem Katalysator 51 und ist nach außen hin abgeschlossen. Die sich aus dem Abstand des Führungsbauteils 13 zu dem Katalysator 51 ergebende Länge der Mischkammer ist so gewählt, daß die Edukte A' und B' möglichst vollständig vermischt in den Katalysator 51 einströmen.

Ein erfindungsgemäßer Mikrovermischer der in Fig. 3 gezeigten Bauart wies ein aus 14 plattenartigen Elementen bestehendes Führungsbauteil auf. Die Kantenlänge des im Grundriß quadratischen Führungsbauteils betrug 7,4 mm. Jedes plattenartige Element der Art A und B bestand aus einer 300 µm dicken Metallfolie, die 9 in Viertelkreisbögen verlaufende Nuten einer Strukturhöhe von 100 µm aufwies. Die Mitten der Querschnittsflächen der Nuten wiesen gleiche Abstände auf. Die Querschnitte der Nuten wurden so bemessen, daß trotz unterschiedlicher Länge der Kanäle jeder Kanal zwischen der Eintrittsfläche und der Austrittsfläche einen gleichen Druckabfall aufweist, und damit pro Zeiteinheit aus jedem Kanal einer Elementart das gleiche Fluidvolumen austritt. Gemäß der Formel

$$\Delta p = (\mu \cdot k \cdot u \cdot l) / b^2,$$

in der Δp die Druckdifferenz zwischen Eintrittsfläche und Austrittsfläche, μ die dynamische Viskosität des Fluids, k einen vom Verhältnis der Kanalweite zu Kanalhöhe abhängigen Korrekturfaktor, u die Strömungsgeschwindigkeit und l die Länge des Kanals bedeutet, wurde die jeweilige Kanalweite b ausgerechnet. So wurden für eine Druckdifferenz von 60 Pa, einer dynamischen Viskosität von $2 \cdot 10^{-5}$ Pas, einem Korrekturfaktor von 14 bis 20, einer Strömungsgeschwindigkeit von bis zu 0,7 m/s und Längen von 2 mm bis 10 mm die Kanalweiten zu 150 µm bis 470 µm und die Wanddicken der Zwischenstege zu 430 µm bis 150 µm berechnet. Um eine Homogenisierung des Strahlendrucks der

einströmenden Fluide A' und B' zu erreichen, wiesen die Zufuhrkammern eine Tiefe von etwa 500 µm auf.

Ein erfindungsgemäßer Mikroreaktor wurde in seinen Abmessungen für die Oxidation von Ethen mit molekularem Sauerstoff in stöchiometrischem Verhältnis bei bis zu 30 bar und bis zu 300°C an einem Silberkatalysator berechnet. Neben dem zuvor beschriebenen statischen Mikrovermischer wies der Mikroreaktor einen Katalysator aus 14 Silber-Folien mit jeweils 9 geradlinig verlaufenden Nuten eines Querschnitts von 50 × 500 µm auf. Die Mischkammer hatte eine auf vollständige Vermischung der Edukte berechnete Länge von 1 mm. Die Länge des Katalysators betrug 10 mm. Die gute Wärmeleitung der aus Silber bestehenden Folien ermöglicht es, ohne einen Wärmetauscher zur Abfuhr der Reaktionswärme zu arbeiten.

Die plattenartigen Elemente des Mikrovermischers und des Katalysators bestanden aus Metallfolien, die nach dem folgenden Verfahren hergestellt wurden. Ein als ebenes Substrat dienender Titan-Wafer wurde mit einer gleichmäßig dicken Schicht aus Polymethylmethacrylat beschichtet. Die Schicht wurde mittels Mikrofräsen und Laserbestrahlung strukturiert. Anschließend wurde eine dünne Goldschicht als elektrischer Kontakt aufgebracht. Durch galvanische Abscheidung wurden die Mikrostrukturen mit Nickel aufgefüllt. Beide Seiten des so erhaltenen mikrostrukturierten Metallkörpers wurden poliert bzw. geläppt. Die Mikrostrukturen der strukturierten Seite wurden vor der Bearbeitung mit einem Kunststoff gefüllt, um eine Beschädigung der Strukturen zu vermeiden. Anschließend wurde der Kunststoff herausgelöst. Folienstücke, die die späteren plattenartigen Elemente darstellen, wurden aus dem Metallkörper mittels Drahterodieren vereinzelt. Als chemisch inerte Schicht wurde auf die Folien eine Goldschicht aufgebracht. Die so erhaltenen Folienstücke wurden in die für das Führungsbau teil vorgesehene Ausnehmung des Mikrovermischers eingepaßt und von oben mit einer Deckplatte druckdicht verschlossen.

Weitere Verfahren zur Herstellung von mikrostrukturierten Folien zum Einsatz in den Mikrovermischer und Mikroreaktor umfassen lithographische Verfahren, Prägeverfahren mit mikrostrukturierten Prägestempeln, die beispielsweise durch Funkenerosion unter Verwendung mikrostrukturierter Elektroden hergestellt werden, oder Mikrofräsen.

Plattenartige Elemente des Mikrovermischers aus Kunststoff können durch direktes Strukturieren mittels Mikrofräsen und/oder Laserablation oder durch Abformung, beispielsweise Spritzguß, hergestellt werden.

Keramik als Material für die plattenartigen Elemente des Mikrovermischers und des Mikroreaktors kann beispielsweise dadurch strukturiert werden, daß polymere Precursoren abgeformt, anschließend unschmelzbar gemacht und pyrolysiert werden, wie dies in der EP 624 558 beschrieben wird.

Bezugszeichenliste

- 1 plattenartiges Element der Art A
- 2 plattenartiges Element der Art B
- 3 Schar von Nuten
- 4 Nut der Elementart A
- 5 Nut der Elementart B
- 6 Zwischensteg
- 7 Stirnfläche eines Elementes
- 8 Abdeckplatte
- 11 Statischer Mikrovermischer
- 12 Mischkammer
- 13 Führungsbau teil
- 14 Zufuhrkammer des Fluids A'

- 15 Zufuhrkammer des Fluids B'
- 16 Eintrittsfläche der Elementart A
- 17 Eintrittsfläche der Elementart B
- 18 Austrittsfläche
- 20 plattenartiges Element der Art A
- 21 plattenartiges Element der Art B
- 22 plattenartiges Element der Art C
- 23 Nut der Elementart A
- 24 Nut der Elementart B
- 25 Nut der Elementart C
- 26 Eintrittsfläche der Elementart A
- 27 Eintrittsfläche der Elementart B
- 28 Eintrittsfläche der Elementart C
- 30 Zufuhrkammer des Fluids A'
- 31 Zufuhrkammer des Fluids B'
- 32 Zufuhrkammer des Fluids C'
- 40 plattenartiges Element mit quer verlaufenden Nuten
- 41 Zufuhrkammer für Heiz- bzw. Kühlmittel
- 42 Austrittskammer für Heiz- bzw. Kühlmittel
- 43 Nut der Zwischenfolie für Heiz- bzw. Kühlmittel
- 50 Mikroreaktor
- 51 Katalysator
- 52 plattenartiges Element
- 53 Nut
- 54 Auslaßkammer

Patentansprüche

1. Statischer Mikrovermischer (11) mit einer Mischkammer (12) und einem vorgeschalteten Führungsbau teil (13) für die getrennte Zufuhr von zu mischenden oder zu dispergierenden Fluiden zu der Mischkammer (12), wobei

a) das Führungsbau teil (13) aus mehreren plattenartigen, übereinandergeschichteten Elementen (1, 2) mindestens zweier Arten A und B zusammengesetzt ist, wobei die Elemente der Art A und die Elemente der Art B Kanäle aufweisen, die von einer Zufuhrkammer (14) eines Fluids A' bzw. von einer Zufuhrkammer (15) eines Fluids B' zu der Mischkammer (12) führen,

b) die plattenartigen Elemente (1, 2) A und B aus dünnen Folien mit einer Dicke bis zu einigen Millimetern und Längen und Breiten bis zu einigen Zentimetern bestehen, in die eine Schar (3) benachbarter Nuten (4, 5) eingearbeitet sind, so daß beim Übereinanderschichten der Folien je eine Schar von Kanälen für die Führung der zu mischenden Fluide A' und B' entsteht, **dadurch gekennzeichnet,**

daß die plattenartigen Elemente (1, 2) mindestens einer Art A bzw. B jeweils eine Schar (3) von Nuten (4, 5) unterschiedlicher Länge mit mindestens einem bogenförmig gekrümmten Abschnitt aufweisen, und

daß die Wanddicken der Stege (6) zwischen den Nuten jedes plattenartigen Elementes (1, 2) der Art A bzw. B so bemessen sind, daß zumindest im Bereich der an die Mischkammer (12) grenzenden Stirnfläche (7) des plattenartigen Elementes (1, 2) die längeren Nuten einen kleineren Abstand zueinander aufweisen als die kürzeren Nuten.

2. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Querschnitte der Nuten (4, 5) der Elementart A bzw. B gleich sind.

3. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß jede Nut (4, 5) eines jeden Elementes der Art A bzw. B

einen im wesentlichen gleichbleibenden Querschnitt aufweist, der so bemessen ist, daß aus jedem von diesen Nuten (4, 5) einer Elementart A oder B gebildeten Kanal pro Zeiteinheit im wesentlichen das gleiche Fluidvolumen in die Mischkammer (12) austritt, und 5
daß die Wanddicken der Zwischenstege (6) zumindest im Bereich der an die Mischkammer (12) grenzenden Stirnfläche (7) so bemessen sind, daß die Mitten der Querschnittsflächen der Nuten jedes plattenartigen Elementes (1, 2) einer Art einen gleichen Abstand aufwei- 10
sen.

4. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß alle Scharen (3) von Nuten (4, 5) parallel zueinander ausgerichtet in die Mischkammer (12) und senkrecht zur der Austrittsfläche (18) münden, die durch die Öffnungen der in die Mischkammer (12) mündenden Kanäle aller plattenartigen Elemente (1, 2) gebildet wird. 15

5. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die dünnen Folien eine Dicke von < 1 mm aufweisen, daß die Nuten (4, 5) Tiefen von < 500 µm und Breiten von < 1 mm aufweisen, und daß die Wanddicken der Zwischenstege (6) und der Nutböden < 1 mm betragen. 20

6. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die dünnen Folien eine Dicke von < 500 µm aufweisen, daß die Nuten (4, 5) Tiefen von < 250 µm und Breiten von 10 bis 500 µm aufweisen, und daß die Wanddicken der Zwischenstege (6) und der Nutböden 50 bis 500 µm 25
betragen.

7. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Führungsbauteil (13) aus mehreren plattenartigen übereinandergeschichteten Elementen (1, 2) 35
zweier Arten A und B zusammengesetzt ist, die eine Schar (3) von Nuten (4, 5) unterschiedlicher Länge mit mindestens einem bogenförmig gekrümmten Abschnitt aufweisen, und

daß die Austrittsfläche (18), die durch die Öffnungen der in die Mischkammer mündenden Kanäle aller plattenartigen Elemente (1, 2) der Arten A und B gebildet wird, und die den Elementarten A und B zugehörigen Eintrittsflächen (16, 17), die durch die Öffnungen der in die Zufuhrkammer (14, 15) des Fluids A' bzw. B' 45
mündenden Kanäle der plattenartigen Elemente der Art A bzw. B gebildet werden, so auf unterschiedlichen Seiten des Führungsbauteils angeordnet sind, daß die Ebenen, die durch die beiden Eintrittsflächen (16, 17) gebildet werden, zueinander in einem Winkel von 90 bis 0° bzw. parallel zueinander liegen. 50

8. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Führungsbauteil (13) aus mehreren plattenartigen, übereinandergeschichteten Elementen (20, 21, 22) 55
dreier Arten A, B und C zusammengesetzt ist, wobei die Elementarten A und B jeweils eine Schar von Nuten (23, 24) unterschiedlicher Länge mit mindestens einem bogenförmig gekrümmten Abschnitt aufweisen und die Elementart C eine Schar von geradlinig verlaufenden und gleich beabstandeten Nuten (25) mit im wesentlichen gleichem Querschnitt aufweist, und 60
daß die Austrittsfläche (18), die durch die Öffnungen der in die Mischkammer (12) mündenden Kanäle aller plattenartigen Elemente (20, 21, 22) der Arten A, B und C gebildet wird, und die den Elementarten A, B und C zugehörigen Eintrittsflächen (26, 27, 28), die durch die Öffnungen der in die Zufuhrkammer des 65

Fluids A', B' bzw. C' mündenden Kanäle der plattenartigen Elemente der Art A, B bzw. C gebildet werden, so auf unterschiedlichen Seiten des Führungsbauteils angeordnet sind, daß die Ebenen, in der die beiden der Elementarten A und B zugehörigen Eintrittsflächen (26, 27) liegen, zueinander in einem Winkel von 90 bis 0° bzw. parallel zueinander liegen, wobei die Ebene, in der die der Elementart C zugehörigen Eintrittsfläche (28) liegt, mit den Ebenen der beiden übrigen Eintrittsflächen (26, 27) einen Winkel von 90° bis 135° bildet und sich die Ebene, in der die Austrittsfläche (18) liegt, im wesentlichen parallel zu der Ebene befindet, in der die der Elementart C zugehörigen Eintrittsfläche (28) liegt.

9. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Führungsbauteil aus mehreren plattenartigen Elementen von vier oder mehr Arten zusammengesetzt ist und unterschiedliche, den Elementarten zugehörige und an die entsprechenden Zufuhrkammern angrenzende Eintrittsflächen und eine gemeinsame Austrittsfläche aufweist.

10. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Führungsbauteil 4 bis 60 plattenartige, übereinandergeschichtete Elemente aufweist.

11. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß in das Führungsbauteil ein Wärmetauscher integriert ist.

12. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß jeweils zwischen mindestens zwei Folien (1, 2) mindestens eine weitere Folie (40) angeordnet ist, die quer zu den Nuten der beiden angrenzenden Folien verlaufende Nuten zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels aufweist.

13. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen dem Führungsbauteil und der Mischkammer ein Wärmetauscher angeordnet ist.

14. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Folien aus mindestens einem galvanisch abscheidbaren Metall, einem Polymer oder einem keramischen Material bestehen.

15. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß auf den Folien eine dünne, gegen die eingesetzten Fluide chemisch inerte Schicht aufgebracht ist.

16. Statischer Mikrovermischer nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß die chemisch inerte Schicht aus mindestens einem Edelmetall, vorzugsweise Gold, besteht.

17. Statischer Mikrovermischer nach einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Mikrovermischer ein Bauteil mit Abdeckplatte umfaßt, das Ausnehmungen für die Zufuhrkammern, die Mischkammer und das Führungsbauteil aufweist, und daß die plattenartigen Elemente in die Ausnehmung für das Führungsbauteil eingepaßt sind und mittels der Abdeckplatte druckdicht abgeschlossen sind.

18. Mikroreaktor (50) zur Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen, der ein Führungsbauteil (13) für die getrennte Zufuhr mindestens zweier gasförmiger Edukte A' und B', eine Mischkammer (12) und einen Katalysator (51) umfaßt, wobei

a) das Führungsbauteil (13) und die Mischkammer (12) von einem statischen Mikrovermischer (11) nach einem der Ansprüche 1 bis 17 gebildet

werden,

b) die Mischkammer (12) so bemessen ist, daß die aus dem Führungsbauteil (13) in die Mischkammer (12) austretenden Edukte vor Eintritt in den Katalysator (51) weitgehend vollständig vermischt werden, 5

c) der Katalysator (51) aus mehreren plattenartigen, übereinandergeschichteten Elementen (52) zusammengesetzt ist, die aus dünnen Folien mit einer Dicke bis zu einigen Millimetern bestehen, in die jeweils eine Schar benachbarter Nuten (53) eingearbeitet ist, so daß beim Übereinanderschichten der Folien je eine Schar von in die Mischkammer einmündenden Kanälen für die Führung der vermischten Edukte A' und B' entsteht, wobei die Oberfläche der Kanäle mindestens ein katalytisch aktives Material aufweist. 10 15

19. Mikroreaktor nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischkammer (12) einen zum Führungsbauteil (13) und Katalysator (51) hin offenen und nach außen hin abgeschlossenen Freiraum darstellt. 20

20. Mikroreaktor nach Anspruch 18 oder 19, dadurch gekennzeichnet, daß der die Mischkammer (12) umfassende Abstand zwischen dem Führungsbauteil (13) und dem Katalysator (51) < 5 mm beträgt. 25

21. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß die dünnen Folien des Katalysators eine Dicke von < 1 mm aufweisen, daß die Nuten (53) Tiefen von < 500 µm und Breiten von < 1 mm aufweisen, und daß die Wanddicken der Zwischenstege und der Nutböden < 1 mm betragen. 30

22. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Folien des Katalysators eine Vielzahl geradlinig verlaufender, gleich bestandener Nuten (53) gleichen Querschnitts aufweisen. 35

23. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 22, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Katalysator ein Wärmetauscher für die Abfuhr oder Zufuhr von Reaktionswärme integriert ist. 40

24. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 23, dadurch gekennzeichnet, daß in den Katalysator ein Wärmetauscher integriert ist, wobei jeweils zwischen mindestens zwei Folien des Katalysators mindestens eine weitere Folie angeordnet ist, die quer zu den Nuten der beiden angrenzenden Folien verlaufende Nuten zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmittels aufweist. 45

25. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 24, dadurch gekennzeichnet, daß die Folien des Katalysators aus mindestens einem galvanisch abscheidbaren Metall oder einem keramischen Material bestehen. 50

26. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 25, dadurch gekennzeichnet, daß die plattenartigen Elemente des Katalysators aus einem katalytisch aktiven Material bestehen. 55

27. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 26, dadurch gekennzeichnet, daß die plattenartigen Elemente des Katalysators mit einem katalytisch aktiven Material beschichtet sind.

28. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 27, dadurch gekennzeichnet, daß der Mikroreaktor eine Vorrichtung zum elektrischen Beheizen des Katalysators oder/und des Führungsbauteils aufweist. 60

29. Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 18 bis 28, dadurch gekennzeichnet, daß der Mikroreaktor ein Bauteil mit Abdeckplatte umfaßt, das Ausnehmungen für die Zufuhrkammern (14, 15), das Führungsbauteil (13), die Mischkammer (12) und den Katalysator (51) 65

aufweist, und daß die plattenartigen Elemente (1, 2, 52) in die Ausnehmung für das Führungsbauteil bzw. den Katalysator eingepaßt sind und mittels der Abdeckplatte druckdicht abgeschlossen sind.

30. Verwendung des Mikroreaktors nach einem der Ansprüche 18 bis 29 zur Herstellung von Oxiranen in der Gasphase durch katalytische Oxidation von mindestens einer ungesättigten Verbindung mit Luft oder molekularem Sauerstoff.

31. Verwendung nach Anspruch 30, dadurch gekennzeichnet, daß die ungesättigte Verbindung Ethen ist.

Hierzu 9 Seite(n) Zeichnungen

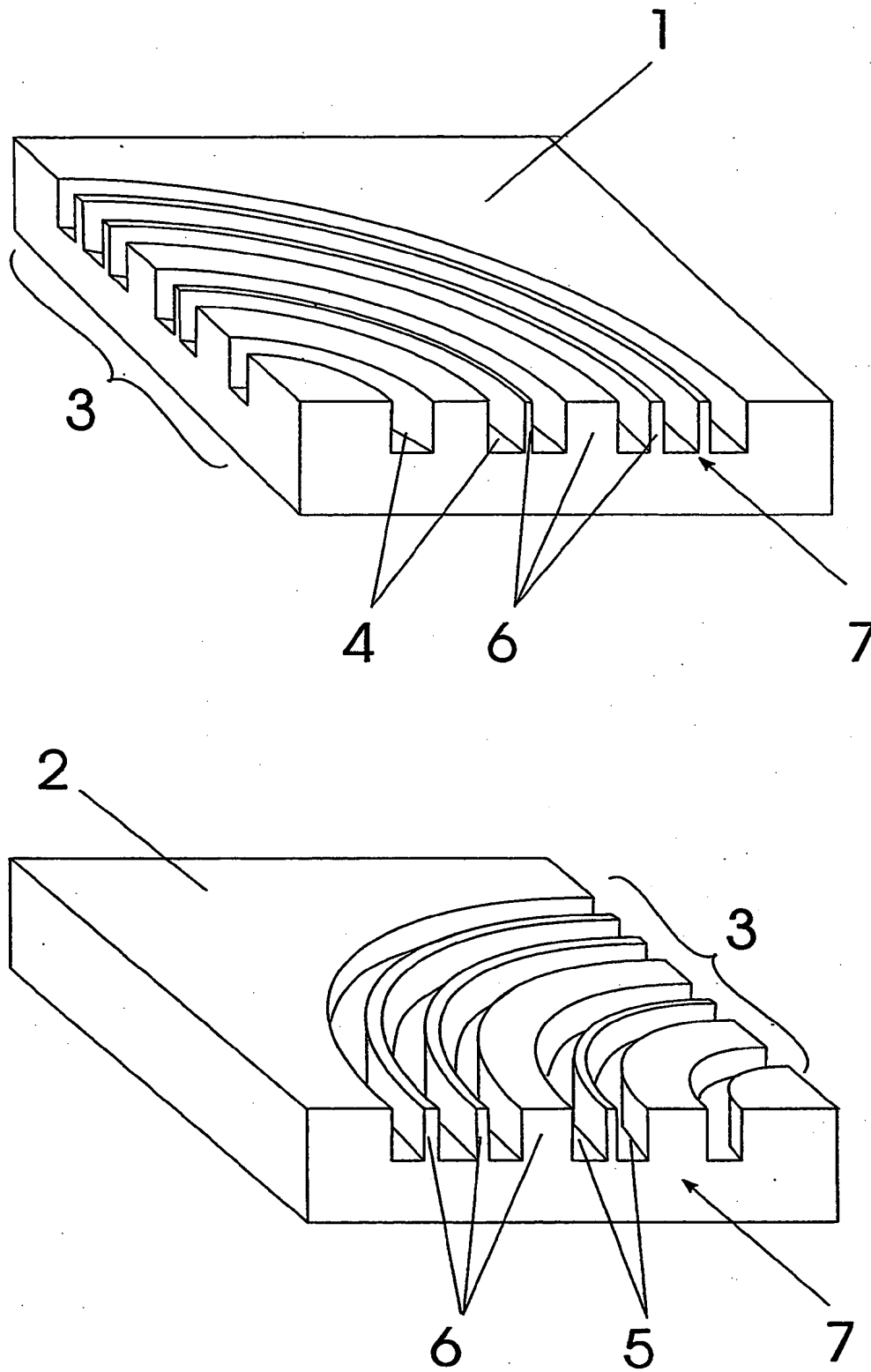


Fig.1

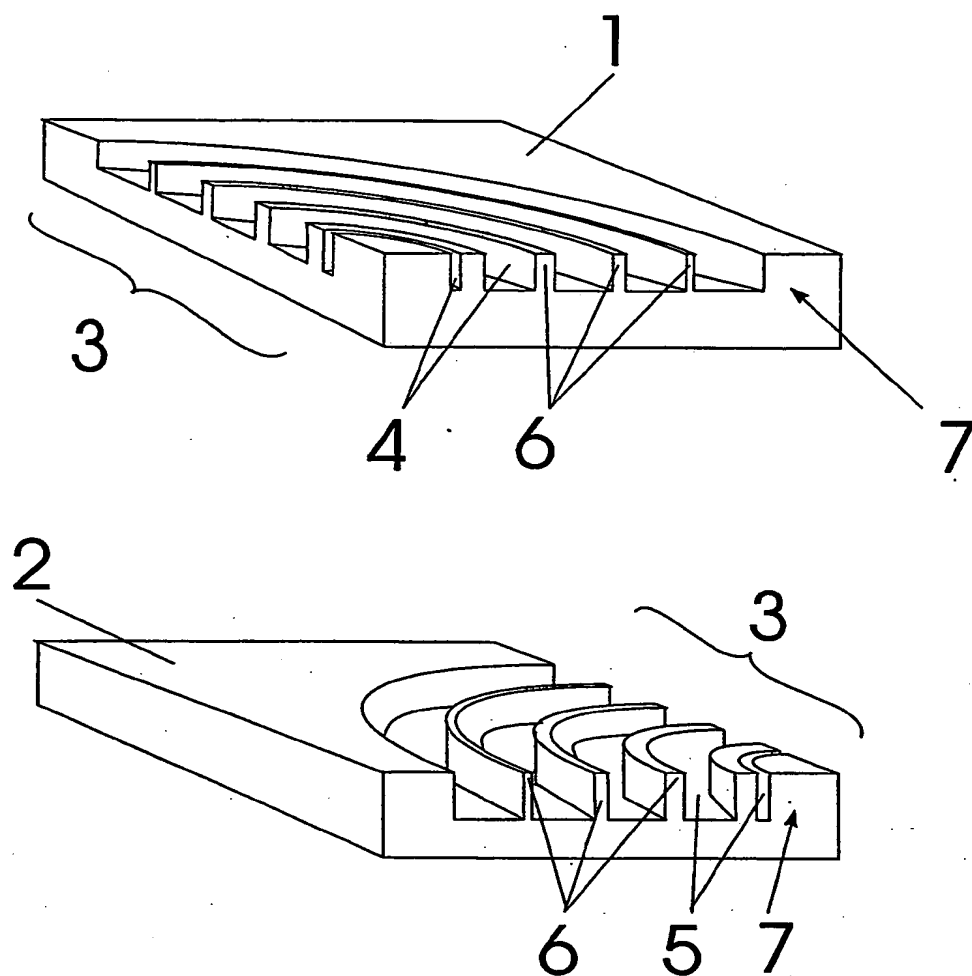


Fig.2

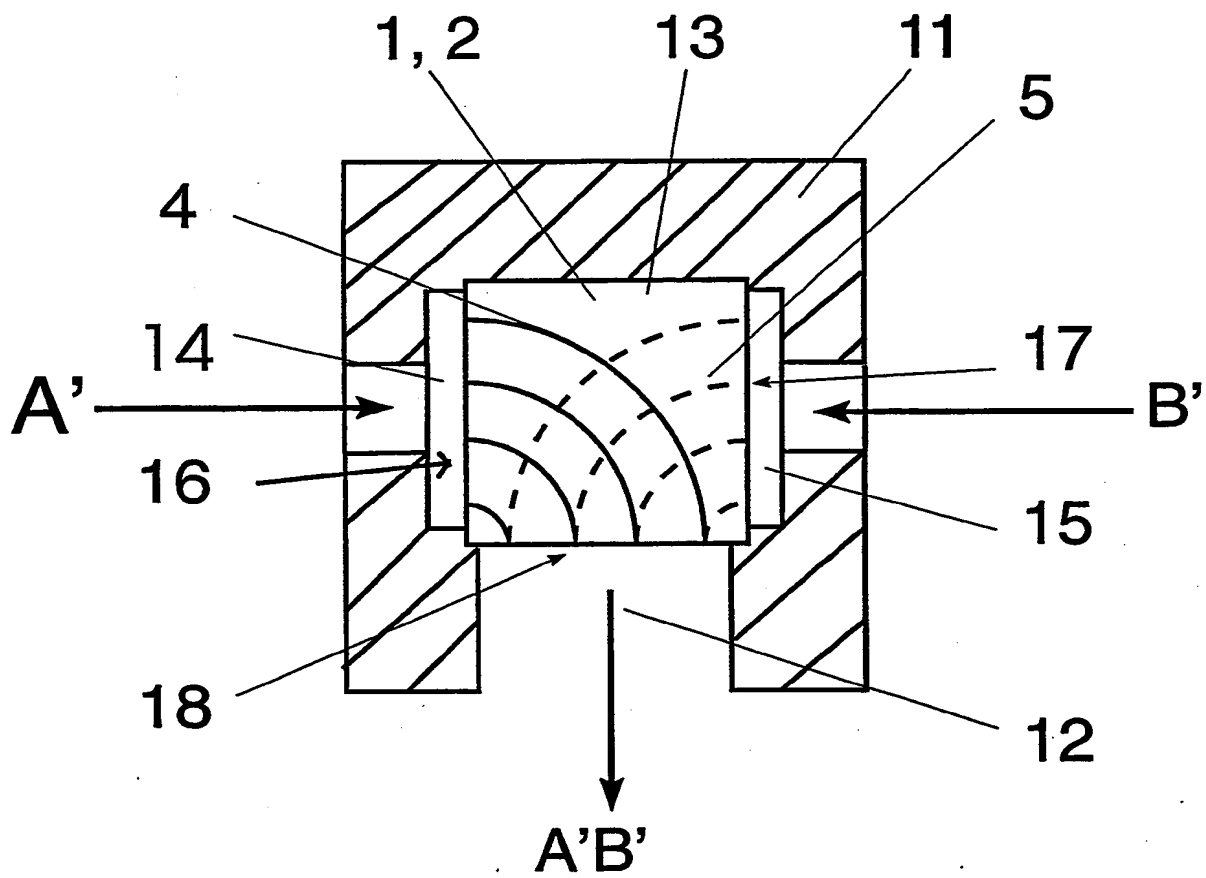


Fig.3

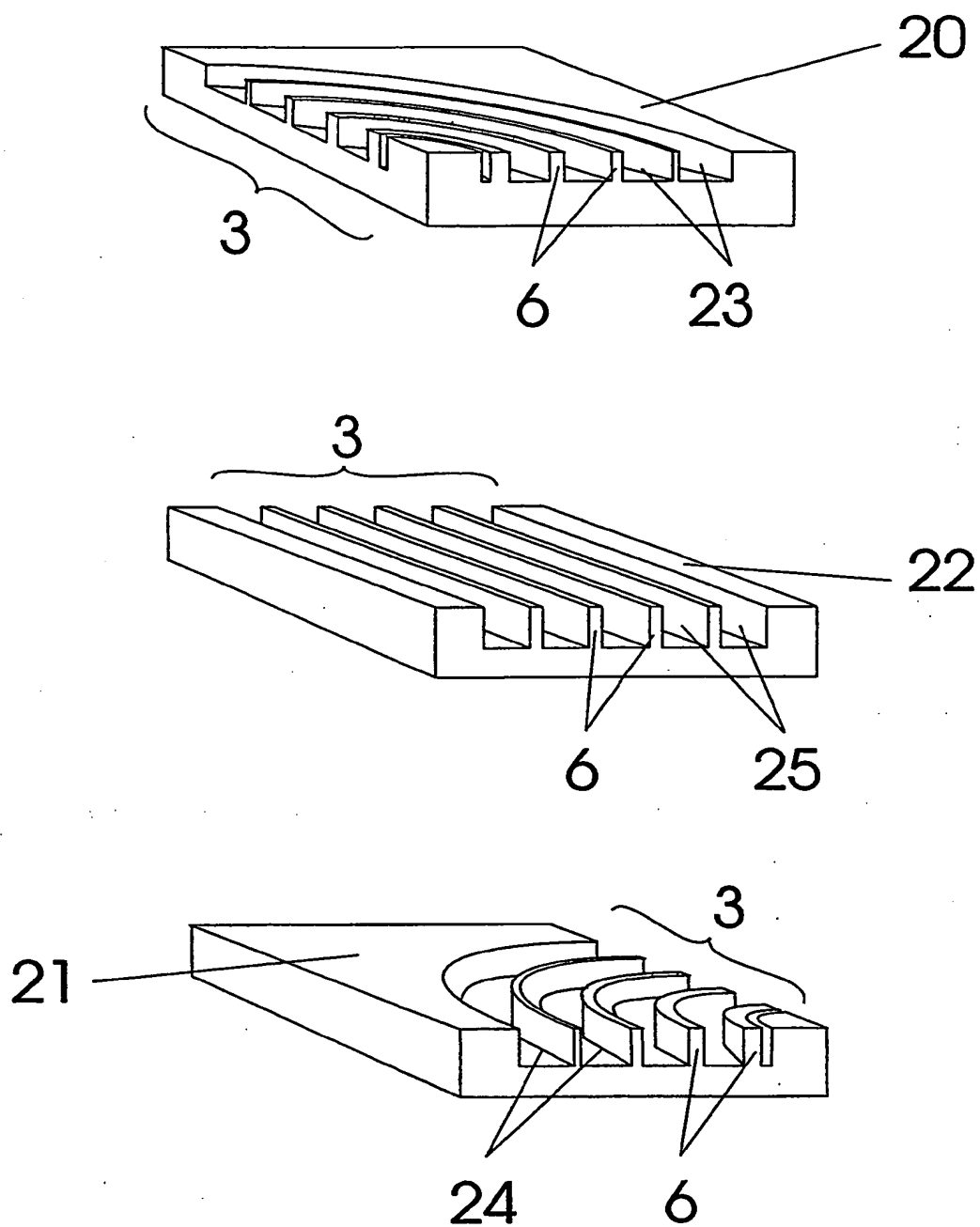


Fig.4

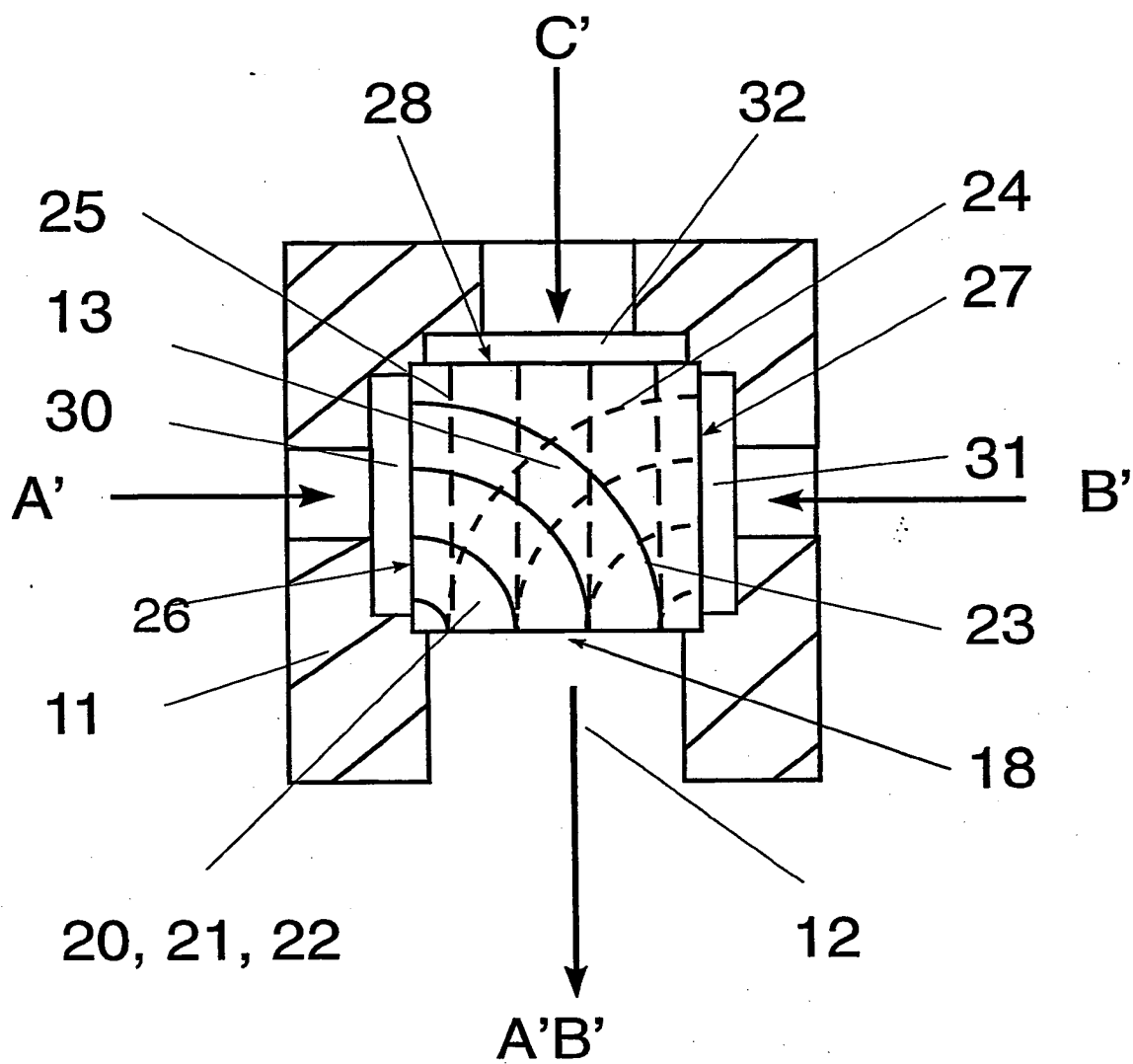


Fig.5

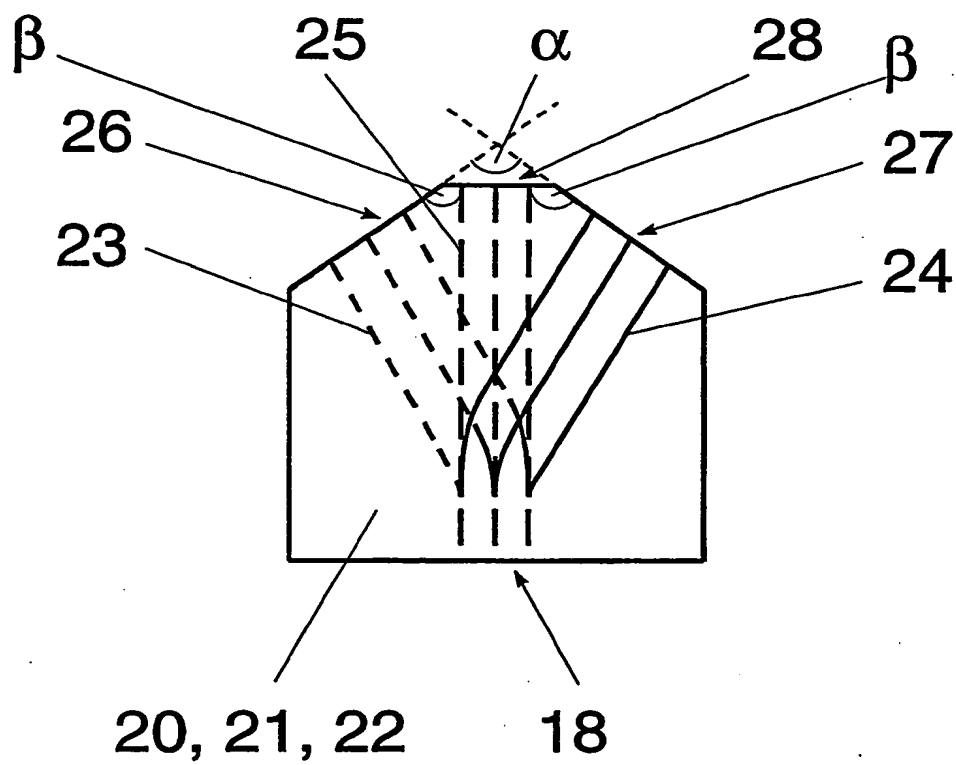


Fig.6

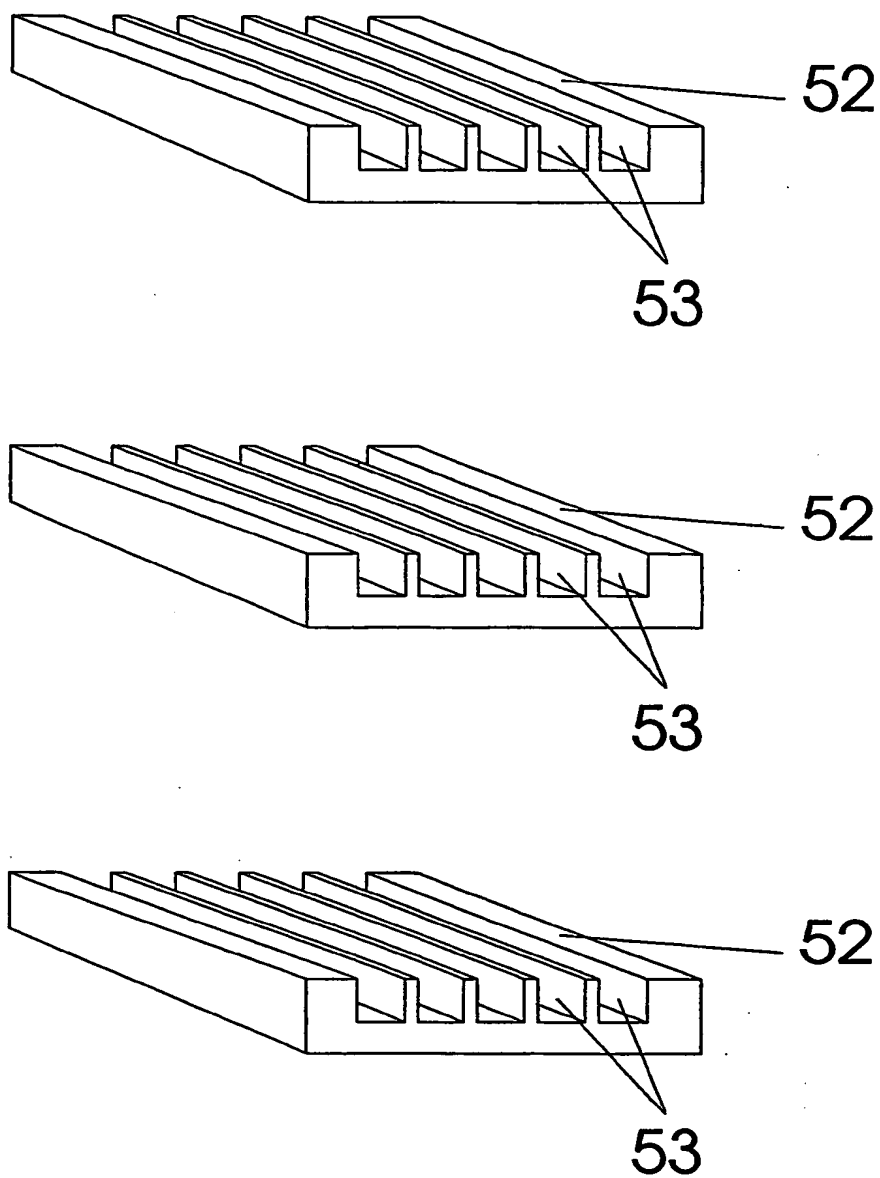


Fig.8

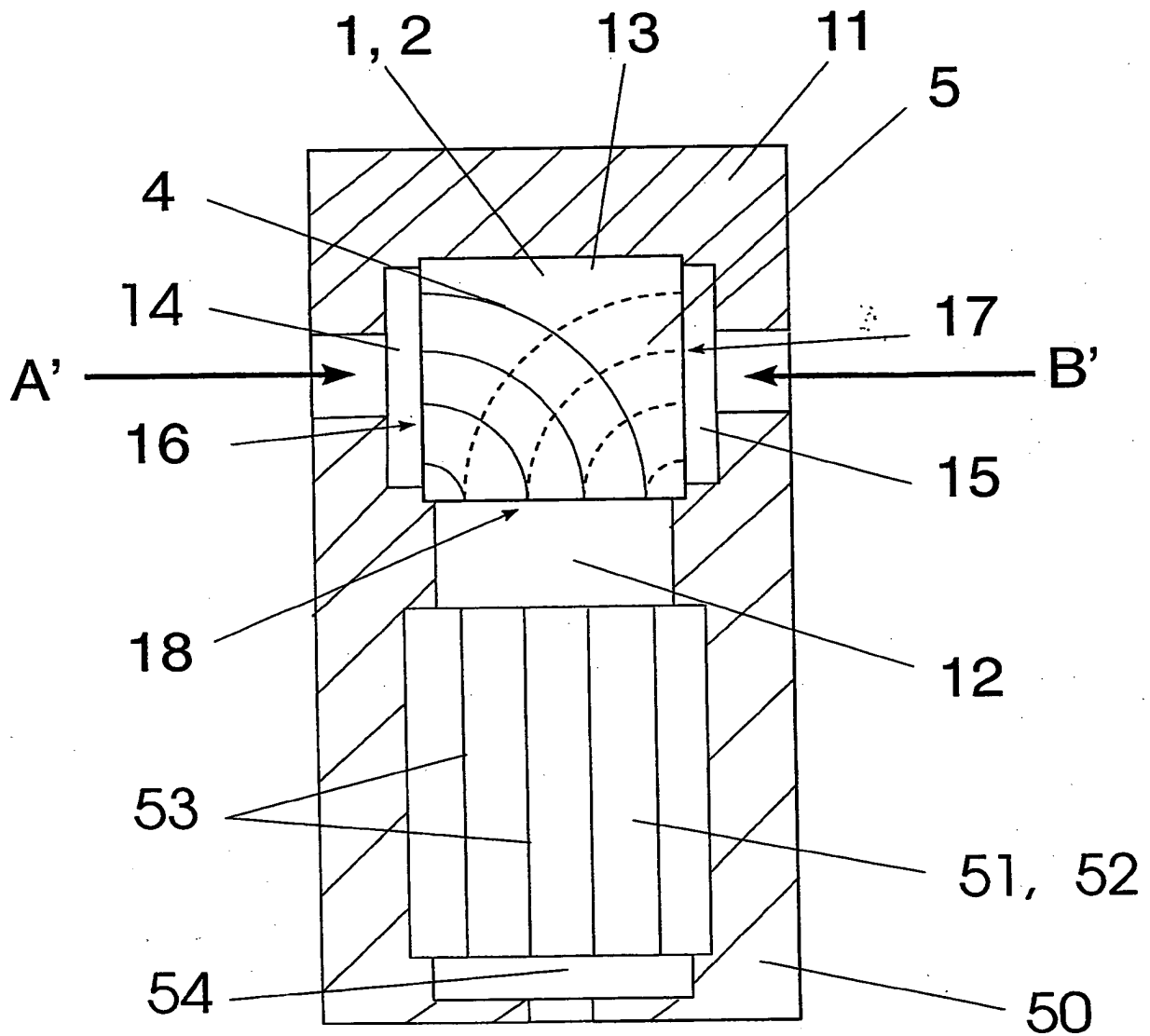


Fig.9